

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-029967

(43)Date of publication of application : 29.01.2002

(51)Int.Cl.

A61K 31/232  
A23D 9/007  
A23L 1/30  
A61K 31/355  
A61K 31/4415  
A61K 31/51  
A61K 31/525  
A61K 31/714  
A61K 35/78  
A61P 15/00  
C11C 3/00  
C11C 3/10  
// C12P 7/64

(21)Application number : 2001-067743

(22)Date of filing : 02.02.2001

(71)Applicant : NISSHIN OIL MILLS LTD:THE

(72)Inventor : SEKI SHINJI  
HIRASAWA HIROKO  
SAKURADA YOSHIO  
ARAI YUURI  
SHIRASAWA SEIICHI  
NEGISHI SATOSHI

(30)Priority

Priority number : 2000025059  
2000138353

Priority date : 02.02.2000  
11.05.2000

Priority country : JP

JP

(54) EDIBLE OIL OR FAT COMPOSITION FOR MITIGATING PREMENSTRUAL SYNDROME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a glycerol fatty acid ester which has a premenstrual syndrome-mitigating effect, has excellent immediate effectivity and is useful for mitigating the premenstrual syndrome, and to provide a premenstrual syndrome-mitigating agent, a food and a drink for mitigating the premenstrual syndrome, and an edible oil or fat composition for mitigating the premenstrual syndrome, each containing the glycerol fatty acid ester, and so on.

SOLUTION: This glycerol fatty acid ester which has excellent immediate effectivity and is useful for mitigating the premenstrual syndrome, characterized in that at least one group at the 1- and 3-positions is  $\gamma$ -linolenic acid. The premenstrual syndrome-mitigating agent, the food and the drink for mitigating the premenstrual syndrome, and the edible oil or fat composition for mitigating the premenstrual syndrome, each containing the glycerol fatty acid ester.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the

2002-29967

examiner's decision of rejection or application  
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-29967

(P2002-29967A)

(43) 公開日 平成14年1月29日 (2002.1.29)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード* (参考)
A 6 1 K 31/232		A 6 1 K 31/232	4 B 0 1 8
A 2 3 D 9/007		A 2 3 L 1/30	B 4 B 0 2 6
A 2 3 L 1/30		A 6 1 K 31/355	4 B 0 6 4
A 6 1 K 31/355		31/4415	4 C 0 8 6
31/4415		31/51	4 C 0 8 8

審査請求 未請求 請求項の数31 書面 (全 19 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2001-67743 (P2001-67743)	(71) 出願人	000227009 日清製油株式会社 東京都中央区新川1丁目23番1号
(22) 出願日	平成13年2月2日 (2001.2.2)	(72) 発明者	関 慎二 神奈川県横浜市港南区港南台1-29-1
(31) 優先権主張番号	特願2000-25059 (P2000-25059)	(72) 発明者	平澤 裕子 神奈川県横浜市磯子区栗木2-16-5
(32) 優先日	平成12年2月2日 (2000.2.2)	(72) 発明者	桜田 美穂 神奈川県三浦市三崎町小網代21-72
(33) 優先権主張国	日本 (J P)	(72) 発明者	新井 有里 神奈川県横浜市港南区東永谷1-19-23
(31) 優先権主張番号	特願2000-138353 (P2000-138353)	(72) 発明者	白澤 聖一 神奈川県横浜市金沢区六浦町901-152
(32) 優先日	平成12年5月11日 (2000.5.11)		
(33) 優先権主張国	日本 (J P)		
特許法第30条第1項適用申請有り 平成12年12月30日 日本女性心身医学会発行の「女性心身医学 第5巻第2号」に発表			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物

(57) 【要約】

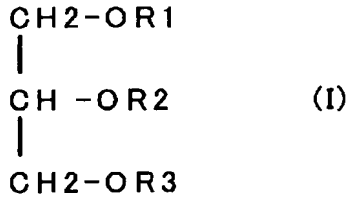
【課題】 本発明は月経前症候群 (= Premenstrual Syndrome; PMS と以下略す) 緩和用効果を有し、かつ、即効性に優れた月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルおよびこれを含有する月経前症候群症状緩和剤、月経前症候群症状緩和用飲食物、月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物等を提供することを課題とする。

【解決手段】 グリセリン脂肪酸エステルの少なくとも1, 3位の一方がγ-リノレン酸である、即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル、及び該グリセリン脂肪酸エステルを含有する月経前症候群症状緩和剤、月経前症候群症状緩和用飲食物、月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】下記一般式(I)において、

【化1】



(式中R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>は水素原子または炭素数2～24の脂肪酸残基を示す。)

R<sub>1</sub>またはR<sub>3</sub>の少なくとも一方がγ-リノレン酸残基である、即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル。

【請求項2】更に、炭素数2～12の脂肪酸残基を1以上有する請求項1に記載の即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル。

【請求項3】請求項1または2に記載の即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルを有効成分とする月経前症候群症状緩和剤。

【請求項4】更に、ビタミンB群、ビタミンE、ハーブ、ミネラル塩類から選ばれる1種または2種以上を含有する請求項3に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項5】ハーブがイチョウ葉、バッションフラワー、レモンバーム、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を含有する請求項4記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項6】ハーブが、イチョウ葉、バッションフラワー、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を含有する血流阻害原因症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項7】ハーブが、イチョウ葉、バッションフラワー、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を含有する陽性精神症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項8】ハーブが、カモミール、レモンバームから選ばれる1種以上または2種以上を含有する消化器系症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項9】ハーブが、カモミール、レモンバームから選ばれる1種または2種以上を含有する陰性精神症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項10】ハーブが、フィーバーフュー、ローズマリーから選ばれる1種または2種以上を含有する疼痛症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項11】ハーブが、フィーバーフュー、ローズマリーから選ばれる1種または2種以上を含有する疲れ易いという症状を緩和することを特徴とする請求項4に記

載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項12】ハーブが、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を含有するむくみ症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項13】ハーブが、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を含有する集聚力低下の症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項14】ハーブが、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を含有する乳房痛症状を緩和することを特徴とする請求項4に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項15】請求項1または2記載の即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル含有することを特徴とする月経前症候群症状緩和用飲食物。

【請求項16】請求項3～14のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和剤を含有する請求項15に記載の月経前症候群症状緩和用飲食物。

【請求項17】飲食物が健康補助飲食物である請求項15または16に記載の月経前症候群症状緩和用飲食物。

【請求項18】飲食物が油脂組成物および/または油脂加工品である請求項15～17のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用飲食物。

【請求項19】請求項1または2に記載の即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルを含有する食用油脂組成物であって、1、3位に結合したγ-リノレン酸残基量が、全構成脂肪酸残基量に対して1%以上であることを特徴とする月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項20】前記1、3位に結合したγ-リノレン酸残基量に対して、1:0.1～3の割合で2位に結合したγ-リノレン酸残基を含有する請求項19に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項21】γ-リノレン酸残基の総量が2質量%以上である請求項19または20に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項22】全構成脂肪酸残基に対し、炭素数2～12の脂肪酸残基量が5質量%以上である請求項19～21のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項23】エステル交換させてなる請求項19～22のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項24】γ-リノレン酸を5～95質量%含有する油脂をエステル交換させてなる請求項19～23のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項25】γ-リノレン酸を5～95質量%、か

10

20

30

40

50

つ、炭素数2～12の脂肪酸を5～40質量%含有する油脂をエステル交換してなる請求項19～24のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項26】下記(A)および/または(B)を原料として調整した後、エステル交換してなる請求項25に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

(A): ポラージ油、月見草、微生物醗酵油脂の1種以上

(b): 炭素数2～12の脂肪酸、炭素数2～14の脂肪酸残基を1～3有するグリセリン脂肪酸エステル、およびこれらを含む油脂の1種以上

【請求項27】ナトリウムメチラートを触媒として、常圧・窒素気流下または10Pa以下の減圧下、80～120℃で、10～60分間エステル交換反応させることを特徴とする請求項23～26のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項28】脂質分解酵素を用いて、40～100℃で2～48時間エステル交換反応させることを特徴とする請求項23～26のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項29】食用油脂組成物を構成する全トリグリセリドに占める、炭素数が2～12の脂肪酸残基を分子内に3つ含有するトリグリセリドの割合が3質量%以下であることを特徴とする請求項19～28のいずれか1項に記載の調理適正を有する月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物。

【請求項30】請求項19～29のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を含有する請求項3～14のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和剤。

【請求項31】請求項19～29のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を含有する請求項15～18のいずれか1項に記載の月経前症候群症状緩和用飲食物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は月経前症候群(=Premenstrual Syndrome; PMSと以下略す)症状緩和用に供されるグリセリン脂肪酸エステル、剤、飲食物、及び食用油脂組成物に関する。さらに詳しくは、吸収性が高く、即効性に優れた月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル、剤、飲食物、及び食用油脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】PMSは、1931年Frankにより初めて報告された月経(=生理)の1週間程前(黄体期)に発症する身体的症状群、あるいは精神的症状群を指し示し、医学的には、「月経開始の3～10日前から始まる身体的、精神的症状で月経開始とともに減退ない

し消失するもの」(日本産科婦人科学会、1990による)と定義されている。また、このPMSという名称は、月経前緊張症(=Premenstrual Tension)とも表現されている。更には、月経前症候群、月経前緊張症といった医学的用語から受けるマイナス・イメージから女性が開放され、その症状のために医療の食べ物にならず、ポジティブに捉えてセルフケアして行くことを提唱して月経前体験(=Premenstrual Experience)等と、その他様々な表現がなされている。PMSの代表的な症状としては、身体的症状では、下腹痛、下腹部張る、腰痛、乳房痛、乳房張る、肩凝り、頭痛、食欲増、肌荒れ、ニキビ、下痢、便秘等が挙げられ、精神的症状としては、イライラ、憂うつ、怒りっぽい、物事が面倒になる、人に暴言をはく、整理整頓したくなる、等が挙げられる。また、こうしたPMSや月経中症状を有する閉経前の女性の数は非常に多く、症状の重さの程度の違いはあるが、閉経前の女性の過半数以上が何らかの症状を有しているものと推察されている。しかも、重度の患者になると日常生活そのものにも支障をきたし、職場、家族、友人関係等において潜在的な対人関係悪化の原因、さらには犯罪との関与も考えられている。また、女性の社会への進出が益々増加する中で、女性の労働生産性とPMSとの関係を指摘する学者もいる。こうした状況の中で、症状を緩和、軽減し女性のQOL(=Quality of Life)を向上させることは、大きな社会的課題であると考えられる。

【0003】このような問題を解決するため、医学、栄養学、看護学等の立場から種々の研究がなされている。例えば、栄養学的観点からは、プロスタグランジンの前駆体である必須脂肪酸を含有する油脂を摂取する方法が着目され、すなわち、前駆体であるγ-リノレン酸を含有する油脂組成物および/またはジホモγ-リノレン酸を含有する油脂組成物を摂取することによるPMSの症状を緩和、軽減に関する学術報告がなされている。また、これらは先行技術としても公開されている。しかしながら、これらの方法では、PMS症状の緩和・軽減に対するプラセボ以上の十分な効果が得られない場合もあり、さらに、即効性、吸収性、体脂肪蓄積性、風味、品質安定性の点で問題がある。中でも油脂の体脂肪蓄積の不安等から常時継続的に服用することには抵抗・煩わしさもあることから、特に即効性があることが需要者から求められている。

【0004】また、健康食品(栄養補助食品)として一般的に食品として利用する場合、十分な効果を得るためには、比較的多量の脂肪酸を長期間に渡って摂取することが必要になる。このことにより、対象となる閉経前の比較的年齢層の低い20～40歳代の女性は、油脂の体脂肪蓄積への懸念を抱き、また経済的負担、身体的負担を強いられることになる。さらに、高度不飽和脂肪酸を

含有することによる油脂組成物の品質安定性に課題があり、そのために一般食品用途の拡大に制約が生じ、多くの女性の摂取機会が損失しているのも現実的な問題として挙げられる。さらには、この脂肪酸は特有な風味を呈し、一般的には好まれていない。

【0005】具体的には、例えば、Casper et al (1987)、Khoo et al (1990)、Collins et al (1993)等の文献では、ダブルブラインド・クロスオーバー試験方法で、 $\gamma$ -リノレン酸をトリグリセリドとして含有する月見草油の摂取によるPMS症状緩和に対する有効性評価試験結果について記述している。しかし、Collinsらの文献では、8週間の長期に渡って、一日に油脂として6g、 $\gamma$ -リノレン酸として480mgを摂取したが、対照区(流動パラフィン)と比較して有意な効果は得られなかったと報告している。また、特開昭54-117035号公報では、「PMSの症状緩和のための $\gamma$ -リノレン酸もしくはその生理的官能性誘導体および/またはジホモ $\gamma$ -リノレン酸もしくはその生理的官能性誘導体の単独または医療として許容されるビヒクルとの組み合わせからなることを特徴とする医薬品組成物」が開示されている。ここでは、 $\gamma$ -リノレン酸および/またはジホモ $\gamma$ -リノレン酸もしくはそれらの生理的官能性誘導体の月経異常の治療への利用が記載されているにすぎず、月経前症候群症状緩和の即効性、吸収性、風味、品質安定性等の問題点を指摘したものではなく、これらを解決したものでもない。特開昭62-16415号公報では、「必須脂肪酸であるリノール酸の代謝生成物である $\gamma$ -リノレン酸、ジホモ $\gamma$ -リノレン酸、アラキドン酸、22:4n-6または22:5n-6の一種以上および $\alpha$ -リノレン酸、または $\alpha$ -リノレン酸の代謝生成物の18:4n-3、20:4n-3、20:5n-3、22:5n-3または22:6n-3の一種以上を、それ自体で、またはエステル、塩、アミドまたは体内において酸に変換可能な他の誘導体の形で、単独で、または許容しうる製薬用担体または希釈剤と共に用いることを特徴とするPMS治療用医薬品組成物」が開示されている。しかし、これも特開昭54-117035号公報と同様に、上述した問題点を指摘しているものではなく、これらの問題点を解決したものでもない。さらに、PMS緩和に関する $\gamma$ -リノレン酸含有油脂組成物が、特開昭63-77817号公報、特開平5-201924号公報において開示されている。特開昭63-77817号公報では、 $\gamma$ -リノレン酸とカルシウム塩との併用による $\gamma$ -リノレン酸の効果への影響を示唆したものであり、これは、油脂構造による症状緩和効果等への影響について言及したものではない。また、特開平5-201924号公報は、油脂構造の違いによる効果への影響に言及したものと考えられるが、一般に天然の $\gamma$ -リノレン酸の補給原料として使用される月見草油脂、

ボラージ草油脂に含まれるトリグリセライドの構成成分である、 $\gamma$ -リノレオイルモノ $\gamma$ -リノレニルグリセロール(DLMG)の濃度と効果について言及したものにすぎない。

【0006】従って、上述したいずれの先行技術においても、トリグリセリドの構成脂肪酸として $\gamma$ -リノレン酸を含み、かつ油脂組成物中の全構成脂肪酸に占める中鎖脂肪酸の割合が体脂肪蓄積性、吸収性に、また $\gamma$ -リノレン酸の1位および/または3位トリグリセライド結合部位の割合が症状緩和の即効性、品質安定性、風味等に影響を及ぼし、それらの点において従来の $\gamma$ -リノレン酸含有油脂より優れていることを言及しているものではない。

【0007】特開平4-501812号公報には、長鎖脂肪酸と短鎖脂肪酸から構成されるトリグリセリドにより、低カロリー油脂が提供できることが開示されている。しかし、短鎖脂肪酸からなるトリグリセリドは特有の臭いを有していることから、利用可能な調理品に限られ汎用性のある食用油として適さない。また、中鎖脂肪酸はエネルギー化されやすいことから体脂肪蓄積が少ないことが知られている(J. Lipid Res. 37, 708-726 (1996))。しかし、中鎖脂肪酸から構成されるトリグリセリドは元来安全性の高いものであるが、一度に多量に摂取した場合下痢、吐き気、腹痛、胸焼け、食欲不振などの症状を起こすことが報告されている。特開平4-300826号公報、特開平8-60180号公報および特開平10-176181号公報には、ジグリセリドを有効成分とする体脂肪蓄積が少ない油脂組成物が開示されている。しかし、ジグリセリドを豊富に含む油脂組成物を長期にわたって摂取し続けた場合の安全性は、完全に証明されているわけではない。また、高濃度のジグリセリドを低コストで製造することは難しく、経済的見地から汎用的に使用しにくい欠点がある。さらに特開平8-269478号公報には、ジグリセリドおよびトリグリセリドからなる油脂組成物中、分子内に中鎖脂肪酸を2つ含有するトリグリセリドを31質量%以上含む体脂肪蓄積の少ない油脂組成物が開示されている。この発明もまたジグリセリドを有効成分とするため、前記特開平4-300826号公報、特開平8-60180号公報および特開平10-176181号公報と同様の問題を抱えている。また、特公平4-4358号公報には、中鎖脂肪酸から成るトリグリセライドと、 $\gamma$ -リノレン酸を含む油脂から成る油脂組成物が記載されている。しかし、この特公平4-4358号公報では、用途がエネルギー供給障害(例えば、人口蘇生術や栄養失調条件)並びに脂質消化障害又は糖尿病のような代謝疾患の状況に使用するものであると説明されており、本発明の効果である月経前症候群症状緩和については何ら記載されていない。

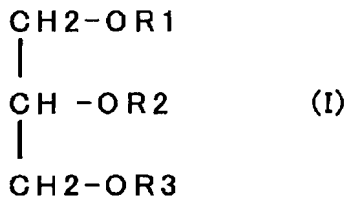
【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、PM S緩和用に供される症状緩和効果、特に優れた即効性を有し、さらには体脂肪低蓄積性、γ-リノレン酸の高吸収性、風味や品質安定性等に優れた月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル、月経前症候群症状緩和剤、月経前症候群症状緩和用飲食物、月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を提供することを目的とする。

【0009】

【発明が解決するための手段】本発明者らは上記課題を達成するために、鋭意検討を重ねた結果、γ-リノレン酸を含む油脂をエステル交換反応をさせること等により得られる、1, 3位にγ-リノレン酸を有するグリセリン脂肪酸エステルが、月経前症候群症状緩和効果を有し、更には、優れた即効性効果を有することを見出した。また、γ-リノレン酸を有する油脂に短鎖または中鎖脂肪酸を含有する油脂を配合した後エステル交換することにより、更に上記効果が向上することも同時に見出した。また、構成脂肪酸として1, 3位結合部位に結合しているγ-リノレン酸の割合や、短鎖または中鎖脂肪酸残基の割合が体脂肪蓄積性、吸収性、症状緩和に対する即効性、品質安定性、風味と密接に関連することを見出し、本発明を完成させた。すなわち、本発明は下記一般式(Ⅰ)において、

【化2】



(式中R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>は水素原子または炭素数2～24の脂肪酸残基を示す。)

R<sub>1</sub>またはR<sub>3</sub>の少なくとも一方がγ-リノレン酸残基である、即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル、さらに好ましくは、炭素数2～12の脂肪酸残基を1以上有する前記において記載された即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルに関する。また、前記において記載された即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルを有効成分とする月経前症候群症状緩和剤に関し、好ましくは、更に、ビタミンB群、ビタミンE、ハーブ、ミネラル塩類から選ばれる1種または2種以上を含有する月経前症候群症状緩和剤に関する。また、好ましくは、ハーブがイチヨウ葉、パッションフラワー、レモンバーム、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を含有する月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、イチヨウ葉、パッション

フラワー、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を含有する陽性精神症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、カモミール、レモンバームから選ばれる1種以上または2種以上を含有する消化器系症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、カモミール、レモンバームから選ばれる1種または2種以上を含有する陰性精神症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、フィバーフュー、ローズマリーから選ばれる1種または2種以上を含有する疼痛症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、フィバーフュー、ローズマリーから選ばれる1種または2種以上を含有する疲れ易いという症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を含有するむくみ症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を含有する集中力低下の症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関し、ハーブが、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を含有する乳房痛症状を緩和することを特徴とする月経前症候群症状緩和剤に関する。また、即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル含有することを特徴とする月経前症候群症状緩和用飲食物に関し、また、前記月経前症候群症状緩和剤を含有する月経前症候群症状緩和用飲食物に関する。好ましくは、飲食物が健康補助飲食物である場合が好ましく、また、飲食物が油脂組成物および/または油脂加工品である場合が好ましい。また、前記即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルを含有する食用油脂組成物であって、1, 3位に結合したγ-リノレン酸残基量が、全構成脂肪酸残基量に対して1質量%以上であることを特徴とする月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物に関し、好ましくは前記1, 3位に結合したγ-リノレン酸残基量に対して、1:0.1～3の割合で2位に結合したγ-リノレン酸残基を含有する月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物が好ましく、好ましくは、更にγ-リノレン酸残基の総量が2質量%以上である月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物に関する。また、全構成脂肪酸残基に対し、炭素数2～12の脂肪酸残基量が5質量%以上である前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物が好ましい。前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物としてはエステル交換させてなるものが好ましく、γ-リノレン酸を5～95質量%含有する油脂をエステル交換させてなるものが好ましく、特にγ-リノレン酸を5～95質量%、かつ、炭素数2～12の脂肪酸を5～40質量%含有する油脂をエステル交換してなるものが好ましく、ここで、(A):ボラージ油、月見草、微生物醗酵油脂の

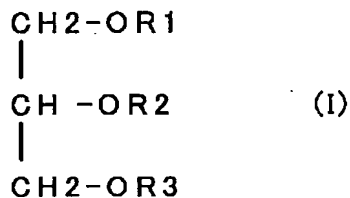
1種以上および／または(b):炭素数2~12の脂肪酸、炭素数2~14の脂肪酸残基を1~3有するグリセリン脂肪酸エステル、およびこれらを含む油脂の1種以上を原料として調整した後、エステル交換してなる前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物が好ましい。また、エステル交換の方法・条件としては、ナトリウムメチラートを触媒とした場合、常圧・窒素気流下または10Pa以下の減圧下、80~120℃で、10~60分間エステル交換反応させる場合が好ましく、また、脂質分解酵素を用いた場合、40~100℃で2~48時間エステル交換反応させることが好ましい。前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を調理に使用する場合には、食用油脂組成物を構成する全トリグリセリドに占める、炭素数が2~12の脂肪酸残基を分子内に3つ含有するトリグリセリドの割合が3質量%以下である場合が好ましい。また、前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を含有する前記月経前症候群症状緩和剤が好ましく、また、前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を含有する前記月経前症候群症状緩和用飲食物が好ましい。

【0010】

【発明の実施の形態】構成脂肪酸として1、3位結合部に結合しているγ-リノレン酸の割合や、短鎖または中鎖脂肪酸残基の割合が体脂肪蓄積性、吸収性、症状緩和に対する即効性、品質安定性、風味と密接に関連することを見出し、本発明を完成させた。以下、本発明を詳しく説明する。

【0011】本発明は下記一般式(1)において、

【化3】



(式中R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>は水素原子または炭素数2~24の脂肪酸残基を示す。)

R<sub>1</sub>、またはR<sub>3</sub>の少なくとも一方がγ-リノレン酸残基である、即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルに関する。これまでにγ-リノレン酸を利用した月経前症候群症状緩和剤等は、予め継続的な長期間の摂取により、その効果を発現させることができる場合が多く、これらは即効性の面において問題があった。実際の症状が現れてから摂取したのでは、その症状を効果的に緩和することができず、実際のニーズを満たすことができないという問題があった。本発明においては、通常γ-リノレン酸がグリセリン脂肪酸エステルにおいて、上記化学式(1)に示すように、1および／または3位にγ-リノレン酸残基を有する場合において、月経前症候群症状緩和効果を有し、かつ、優れ

た即効性を有することを見出した。また、このグリセリン脂肪酸エステルにおいて、1および／または3位にγ-リノレン酸残基を有するものであれば、モノグリセリン脂肪酸エステル、ジグリセリン脂肪酸エステル、トリグリセリン脂肪酸エステルのいずれでもよい。吸収性に関しては、ジグリセリン脂肪酸エステル、モノグリセリン脂肪酸エステルの方が好ましい傾向がある。また、前記グリセリン脂肪酸エステルにおいて、γ-リノレン酸が2位の位置に結合している場合も良く、この場合、月経前症候群症状緩和効果全体としては向上するため好ましい態様である。

【0012】さらに好ましくは、本発明の前記グリセリン脂肪酸エステルにおいて、炭素数2~12の脂肪酸残基を1以上有する場合、その月経前症候群症状緩和における即効性がさらに向上するため好ましい。脂肪酸残基とは、脂肪酸からカルボキシル基のOHを取った基である。炭素数2~12の脂肪酸残基は、炭素数2~5の短鎖脂肪酸と、炭素数6~12の中鎖脂肪酸からなるもので、特に飽和脂肪酸であることが好ましい。中鎖脂肪酸の例としては、カブロン酸、カブリン酸、カプリン酸、ラウリン酸が挙げられる。本発明において、炭素数2~12の脂肪酸残基に関し、好ましくは炭素数6~12の脂肪酸、特に炭素数6~12の飽和脂肪酸が好ましく、さらには、炭素数8~10の脂肪酸、特に炭素数8~10の飽和脂肪酸が好ましく、特にカブリン酸および／またはカプリン酸である場合が好ましい。

【0013】上記グリセリン脂肪酸エステルは、後述するが、例えば、γ-リノレン酸を配合した油脂をエステル交換すること、また、2位にγ-リノレン酸が結合したトリグリセリン脂肪酸エステルを含有する油脂を化学的、酵素的にエステル交換処理をすること等により得ることができる。また、カラム処理等により濃縮精製すること、更に、高濃度で得ることができる。

【0014】即効性の効力とは、黄体期に発現するPMSの症状を、黄体期前から摂取することなく、黄体期のみの摂取で効果がすぐに現れるという効力である。ここで、黄体期とは一般的には月経前の高温期の約2週間の期間を示す。

【0015】本発明の前記グリセリン脂肪酸エステルは、下記に示す月経前症候群症状緩和剤、月経前症候群症状緩和用飲食物、月経前症候群症状緩和用油脂組成物等に好適に配合等することができる。油溶性に優れるため、油脂等に含有させて使用することが使用性等を考えた場合好ましい。

【0016】また、本発明は、前記において記載された即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルを有効成分とする月経前症候群症状緩和剤に関する。

【0017】好ましくは、更に、ビタミンB群、ビタミンE、ハーブ、ミネラル塩類から選ばれる1種または2



種以上を含有月経前症候群症状緩和剤に関する。また、本発明のPMS緩和用油脂組成物を他のPMS症状緩和に対し有効であると報告されている機能素材と組み合わせて使用することも可能である。例えば、カルシウム、マグネシウム、亜鉛、鉄等のミネラル塩類、ビタミンB1、2、6、12、ビタミンE等のビタミン類、西洋オトギリ草、ペニバナ、サフラン、レモンバーム等のハーブおよびそれらのエキス類と組合わせて錠剤、ソフトカプセル、等は上述の一般加工食品に添加して使用することも可能である。さらに、本発明のPMS緩和剤を適量継続的に摂取することにより、血中脂質濃度が低下する作用も期待できる。

【0018】ここで、前記月経前症候群症状緩和剤に配合するハーブとして、例えば、イチヨウ葉、パッションフラワー、レモンバーム、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を含有させることができる。また、月経前症候群症状は複数の症状が存在し、これらの症状緩和に適したハーブを含有させることができる。

【0019】例えば、血流障害原因症状を緩和することを目的とする場合、イチヨウ葉、パッションフラワー、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0020】陽性精神症状を緩和することを目的とする場合、イチヨウ葉、パッションフラワー、ジンジャーから選ばれる1種または2種以上配合することが好ましい。

【0021】消化器系症状を緩和することを目的とする場合、カモミール、レモンバームから選ばれる1種以上または2種以上を配合することが好ましい。

【0022】陰性精神症状を緩和することを目的とする場合、カモミール、レモンバームから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0023】疼痛症状を緩和することを目的とする場合、フィバーフュー、ローズマリーから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0024】疲れ易いという症状を緩和することを目的とする場合、フィバーフュー、ローズマリーから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0025】むくみ症状を緩和することを目的とする場合、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0026】集中力低下の症状を緩和することを目的とする場合、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0027】乳房痛症状を緩和することを目的とする場合、セイヨウタンポポ、セロリから選ばれる1種または2種以上を配合することが好ましい。

【0028】本発明の月経前症候群症状緩和剤は、ヒト及び動物に対し、医薬品、医薬部外品等として経口的及び非経口的に安全に投与できる。非経口的投与として

は、例えば静脈注射、動脈注射、筋肉注射、皮下注射、皮内注射、腹腔内注射、脊髄内注射、硬膜外注射、経皮投与、経肺投与、経鼻投与、経腸投与、口腔内投与、経粘膜投与等が挙げられ、その剤形としては、例えば注射剤、坐剤（肛門座剤、尿道座剤、膣座剤など）、外用液剤（注入剤、含漱剤、洗口剤、湿布剤、吸入剤、噴霧剤、エアゾール剤、浣腸剤、塗布剤、清拭剤、消毒剤、点鼻剤、点耳剤など）、貼付剤、経皮吸収テープ、皮膚外用剤、軟膏剤（バスタ剤、リニメント剤、ローション剤など）などが挙げられる。また、経口投与製剤としては、例えば、内服用錠剤（素錠、糖衣錠、コーティング錠、腸溶錠、チュアブル錠など）、口腔内錠剤（パッカ錠、舌下錠、トローチ錠、付着錠など）、散剤、カプセル剤（ゼラチンカプセル、硬カプセル剤、軟カプセル剤など）、顆粒剤（コーティングした物、丸剤、トローチ剤、液剤、またはこれらの製剤学的に許容され得る徐放化製剤など）などが挙げられる。経口投与用液剤としては、例えば、内用水剤、振とう合剤、懸濁剤、乳剤、シロップ剤、ドライシロップ剤、エリキシル剤、浸剤、煎剤、リモナーゼ剤などが挙げられる。

【0029】これらの製剤は公知の製剤学的製法に準じ、製剤として薬理的に許容され得る基剤、担体、賦形剤、崩壊剤、滑沢剤、着色剤等と共に医薬組成物として投与することもできる。

【0030】これらの製剤に用いる担体や賦形剤としては、例えば乳糖、ブドウ糖、白糖、マンニトール、馬鈴薯デンプン、トウモロコシデンプン、炭酸カルシウム、リン酸カルシウム、硫酸カルシウム、結晶セルロース、カンゾウ末、ゲンチアナ末などが挙げられる。

【0031】これらの製剤に用いる結合剤としては、例えばデンプン、トラガントゴム、ゼラチン、シロップ、ポリビニルアルコール、ポリビニルエーテル、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシプロピルセルロース、メチルセルロース、エチルセルロース、カルボキシメチルセルロースなどが挙げられる。

【0032】これらの製剤に用いる崩壊剤としては例えばデンプン、寒天、ゼラチン末、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カルボキシメチルセルロースカルシウム、結晶セルロース、炭酸カルシウム、炭酸水素ナトリウム、アルギン酸ナトリウムなどが挙げられる。

【0033】これらの製剤に用いる滑沢剤としては例えばステアリン酸マグネシウム、タルク、水素添加植物油、マクロゴールなどが挙げられる。

【0034】これらの製剤に用いる着色剤としては医薬品に添加することが許容されているものを、それぞれ用いることができる。

【0035】また、注射剤を調製する場合は、必要に応じて、pH調節剤、緩衝剤、安定化剤、可溶化剤などを添加して、常法により各注射剤とする。

【0036】錠剤、顆粒剤を調製する場合は、必要に応

じて、白糖、ゼラチン、ヒドロキシプロピルセルロース、精製セラック、ゼラチン、グリセリン、ソルビトール、エチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ポリビニルピロリドン、フタル酸セルロースアセテート、ヒドロキシプロピルメチルセルロースフタレート、メチルメタクリレート、メタアクリル酸重合体などで被膜しても良いし、2つ以上の層で被膜しても良い。さらにエチルセルロースやゼラチンのような物質のカプセルでも良い。

【0037】外用剤の形態としては、経皮投与用または口腔内あるいは経鼻などの経粘膜投与用の固体、半固体、半固体状、または液状の製剤が挙げられる。液状製剤としては、例えば製剤学的に許容される乳剤あるいはローション剤などの乳濁剤、外用チンキ剤、経粘膜投与用液剤などが挙げられる。この製剤は通常用いられる希釈剤としては、例えばエタノール、油分、乳化剤などを含む。半固体製剤としては、例えば油性軟膏、親水性軟膏などの軟膏剤が挙げられる。この製剤は通常用いられる基剤あるいは担体として、例えば、水、ワセリン、ポリエチレングリコール、油分、界面活性剤などを含む。半固体あるいは固体製剤としては、例えば硬膏（ゴム膏、プラスターなど）、フィルム剤、テープ剤、あるいはパップ剤などの経皮投与用または経粘膜（口腔内、経鼻）投与用の貼付剤などが挙げられる。この製剤は通常用いられる基剤あるいは担体として、例えば天然ゴム、ブタジエンゴム、SBR、SISなどの合成ゴムなどのゴム系高分子、ゼラチン、カオリン、酸化亜鉛などの泥状化剤、カルボキシメチルセルロースナトリウム、ポリアクリル酸ナトリウムなどの親水性高分子、アクリル樹脂、流動パラフィンなどの粘着付与剤、水、その他の油分、界面活性剤を含む。これらの製剤は、さらに安定化剤、溶解補助剤、経皮吸収促進剤のような補助剤、あるいは芳香剤、防腐剤などの添加剤などを用いても良い。

【0038】本発明のグリセリン脂肪酸エステルを有効成分として含有するとは、その効果を奏する程度含有するということであり、その含量は特に制限されない。PMS症状を有する人を対象に、γ-リノレン酸の摂取量を変えた数回の摂取試験の結果から、1日の摂取量として1、3位に結合したγ-リノレン酸の量は10mg以上、好ましくは30mg以上、さらに好ましくは50mg以上であること、また、γ-リノレン酸総量の目安量は100mg以上であることが望ましいことが見出された。しかし、年齢、性別、体重、症状の程度、健康状態などの条件により異なるので、上記に限定されない。また、月経前症候群症状緩和剤中の本発明のグリセリン脂肪酸エステルの含量、また、その含量の指標となる1、3位のγ-リノレン酸の含量は、上記の摂取量となるような含量であることが好ましいが、該製剤の質量、大きさ、態様、また、一度の摂取量およびその摂取頻度等により一概に規定することができないが、例えば、0、0

1質量%以上、好ましくは0、1質量%以上、さらに好ましくは1質量%以上、特に好ましくは10質量%以上、最も好ましくは40%以上、特に最も好ましくは60%以上であることが好ましい。

【0039】本発明は、前記即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステル含有することを特徴とする月経前症候群症状緩和用飲食物に関する。該月経前症候群症状緩和用飲食物を得るためには、直接本発明のグリセリン脂肪酸エステルを配合することでも、また、前記月経前症候群症状緩和剤を配合することでも得ることができる。

【0040】また本発明の飲食物には、機能の向上等を目的として、その他の生理活性成分等を配合することができる。抗酸化成分、油性成分、栄養強化のための各種ビタミン類、ミネラル類、アミノ酸類等が挙げられる。

【0041】抗酸化成分としては、特に制限は無いが、例えば、トコフェロール類およびそれらの誘導体、トコトリエンール類およびそれらの誘導体、セサミン、エビセサミン、セサミノール、セサモリン、セサモール等のリグナン類およびそれらの配糖体、β-カロチン等のカロテノイド類及びその誘導体、没食子酸やエラグ酸等のタンニン類及びそれらの誘導体、フラボン、カテキン、ケルセチン、ロイコアントシアニン等々のフラボノイド類、ユビキノールやビタミンK等のキノール類、オリザノール等のフェルラ酸誘導体、オリーブ抽出物等が挙げられる。

【0042】油性成分としては、豚脂、牛脂、乳脂等の動物性油脂、鯨油、イワシ油、ニシン油等の海産物性油脂、大豆油、菜種油、綿実油、米油、コーン油、胡麻油、落花生油、ヒマワリ油、紅花油、椿油、オリーブ油、亜麻仁油、桐油、ヒマシ油、ヤシ油、パーム油、カカオ脂等の植物性油脂等が挙げられるが、特に制限は無い。その他、天然および化学反応や酵素反応により得られた、MCT、MLCT、ジグリセライド、モノグリセライドや、脂肪酸の構造を設計した構造油脂等が挙げられる。

【0043】栄養強化のための各種ビタミン類、ミネラル類、アミノ酸類等については、特に制限はないが、食品添加物公定書に定められるものが望ましい。

【0044】その他、本発明の飲食物には、通常の飲食物に使用されている原材料を配合・使用することができる。特に制限は無いが、例えば、みそ、醤油、ソース、ケチャップ、ブイヨン、焼肉のタレ、カレールー、シチューの素、スープの素、だしの素等の各種調味料等が挙げられる。

【0045】飲食物としては、その形態等について特に制限はないが、例えば、菓子類、飲料、加工食品、レトルト食品、各種調味料、米飯類、油脂、油脂組成物、油脂加工品、各種レンジ食品、冷凍食品、健康補助飲食物等が挙げられる。

【0046】本発明の飲食物について、下記に具体例を列記するが、本発明はこれらに制限されるものではない。本発明の飲食物とは、その形態等について特に制限はないが、例えば、おかき、煎餅、おこし、饅頭、飴等の和菓子、クッキー、ビスケット、クラッカー、パイ、カステラ、ドーナツ、プリン、スポンジケーキ、ワッフル、バタークリーム、カスタードクリーム、シュークリーム、チョコレート、チョコレート菓子、キャラメル、キャンデー、キューインガム、ゼリー、ホットケーキ、パン、菓子パン等の各種洋菓子、ポテトチップ等のスナック菓子、アイスクリーム、アイスキャンデー、シャーベット等の氷菓、乳酸飲料、乳酸菌飲料、濃厚乳性飲料、果汁飲料、果肉飲料、機能性飲料、炭酸飲料等の清涼飲料水、緑茶、紅茶、コーヒー、ココア等の嗜好品及びこれらの飲料、発酵乳、加工乳、チーズ等の乳製品、豆乳、豆腐等の大豆加工食品、ジャム、果実のシロップ漬、フラワーペースト、ピーナツペースト、フルーツペースト等のペースト類、漬物類、うどんの麺、パスタ等の穀物製品類、ハム、ソーセージ、ベーコン、ドライソーセージ、ビーフジャーキー、ハンバーグ等の畜肉製品類、魚肉ハム、魚肉ソーセージ、かまぼこ、ちくわ、はんぺん等の魚貝類製品、魚、貝等の干物、鰹、鯖、鰯等の各種節、ウニ、イカ等の塩辛、スルメ、魚等ののみりん干、鮭等の燻製品、のり、小魚、貝、山菜、椎茸、昆布等の佃煮、カレー、シチュー等のレトルト食品、みそ、醤油、ソース、ケチャップ、ブイヨン、焼肉のタレ、カレールー、シチューの素、スープの素、だしの素等の各種調味料、米飯類、油脂や油脂にレシチン、植物ステロール、トコフェロール、 $\beta$ -カロチン、ビタミンC等を添加した油脂組成物、マーガリン、ショートニング、マヨネーズ、ドレッシング等の油脂加工品や、油脂を含有する各種レンジ及び冷凍食品等が挙げられる。特に、継続的な摂取という面からは、米飯や各種調味料や、油脂やマーガリン、ショートニング、マヨネーズ類、ドレッシング類等の油脂加工品が好ましいといえる。また、形状・性状も特に制限されず、固体状、半固体状、ゲル状、液体状、粉末状等いずれでもよく、また、健康補助飲食料等として使用される場合等の錠剤、カプセル剤、液剤、顆粒剤等いずれでも良い。

【0047】本発明において、月経前症候群症状緩和用飲食物が健康補助飲食物である場合が好ましい。

【0048】また、本発明のグリセリン脂肪酸エステルが油溶性に優れていることから、飲食物が油脂組成物および／または油脂加工品である場合が好ましい。ここで、油脂組成物は、油脂や、油脂を主体として機能等の向上を目的として各種有効成分を添加されたり、化学的な操作がなされることにより得られる組成物をいい、一般の油脂と同様のものをいう。油脂加工品は上記に例示されているマーガリン、ドレッシング類、マヨネーズ類等の油脂を使用・加工した飲食物をいう。

【0049】また、前記即効性効果を有する月経前症候群症状緩和用グリセリン脂肪酸エステルを含有する食用油脂組成物であって、1, 3位に結合した $\gamma$ -リノレン酸残基量が、全構成脂肪酸残基量に対して1質量%以上、好ましくは2質量%以上、さらに好ましくは5質量%以上、特に好ましくは10質量%以上、最も好ましくは30質量%以上、さらに最も好ましくは50質量%以上、特に最も好ましくは70質量%以上であることを特徴とする月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物に関する。上記含量を満たす場合、飲食物の原料として使用しても、飲食料の調理に使用しても、また、前記月経前症候群症状緩和剤として使用した場合にも好適に月経前症候群症状緩和効果を、特に、即効性を有するため好ましい。

【0050】また、好ましくは前記1, 3位に結合した $\gamma$ -リノレン酸残基量に対して、1:0.1~3、好ましくは0.1~2、さらに好ましくは0.1~1.5、特に好ましくは0.5~1.2の割合で2位に結合した $\gamma$ -リノレン酸残基を含有する月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物が好ましい。前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物の有する即効性に加え、持続性も向上されるため、月経前症候群症状緩和効果全体として好ましい。

【0051】また、更に $\gamma$ -リノレン酸残基の総量が1質量%以上、好ましくは2質量%以上、好ましくは5質量%以上、さらに好ましくは10質量%以上、特に好ましくは30質量%以上、最も好ましくは50質量%、最も特に好ましくは70質量%である月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物が好ましい。油脂を直接調理用として使用する場合において1日の摂取量が10gと考えた場合、月経前症候群症状緩和を得るためには1質量%以上含有することが好ましく、また、直接カプセルに含有させて製剤等として使用する場合において、通常の摂取量を考えた場合、5質量%以上であることが好ましい。前記の $\gamma$ -リノレン酸含量を満たす場合は、1, 3位のみ $\gamma$ -リノレン酸が結合している場合であっても、即効性のみでなくある程度の持続性も保持することができ、また、2位の位置に結合する $\gamma$ -リノレン酸が多くなった場合でも即効性を有することができるため、月経前症候群症状緩和効果全体として、好適な効果を有する。製品とした場合、十分な月経前症候群症状緩和効果を有し、かつ、その特性を調整・設計することができるため好ましい。

【0052】また、全構成脂肪酸残基に対し、炭素数2~12の脂肪酸残基量が5質量%以上、好ましくは5~30質量%、さらに好ましくは10~25質量%である前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物が好ましい。この場合、 $\gamma$ -リノレン酸の吸収性が向上し、その月経前症候群症状緩和効果の即効性が向上するため好ましい。ここで、10モル%未満であると即効性が低下し、中鎖脂肪酸60モル%以上であると $\gamma$ -リノレン酸

による症状緩和効果が著しく低くなる。さらに、油脂組成物を構成する全長鎖脂肪酸に占める、長鎖飽和脂肪酸の割合が20質量%以下であることが好ましく、15質量%以下であることがさらに好ましく、7質量%以下であることがさらに一層好ましい。この割合が20質量%を越えると低温での安定性が低下し、油脂組成物に油脂の結晶化がみられるようになるので、生食用には通常適さなくなる。炭素数2～12の脂肪酸は、本発明のグリセリン脂肪酸エステル構成脂肪酸となっているものが多い程好ましい。また、残余の炭素数2～12の脂肪酸は1のグリセリンに3つ結合している場合が最も吸収性が良いが、2つまたは1つ結合している場合も吸収性は良好である。炭素数2～12の脂肪酸に関しては、前述の通りであり、好ましくは炭素数6～12の脂肪酸、特に炭素数6～12の飽和脂肪酸が好ましく、さらには、炭素数8～10の脂肪酸、特に炭素数8～10の飽和脂肪酸が好ましく、特にカプリル酸および／またはカプリン酸である場合が好ましい。特に、飲食や経口摂取を目的とする場合において、短鎖脂肪酸は風味の面から好ましくないため、比較的炭素数が大きい方が好ましい傾向はある。ここで、脂肪酸に関し、前述の短鎖、中鎖脂肪酸以外の長鎖脂肪酸残基とは炭素数が14以上、好ましくは14～24の飽和および不飽和脂肪酸からなるものをいう。炭素数が14以上の長鎖脂肪酸の例としては、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、アラキジン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸等の長鎖飽和脂肪酸、ミリストレイン酸、ペンタデセン酸、パルミトレイン酸、ヘキサデカトリエン酸、ヘプタデセン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、γ-リノレン酸、オクタデカテトラエン酸、イコセン酸、イコサジエン酸、イコサトリエン酸、イコサテトラエン酸、アラキドン酸、イコサペンタエン酸、ドコセン酸、ドコサジエン酸、ドコサペンタエン酸、ドコサヘキサエン酸等の長鎖不飽和脂肪酸が挙げられる。

【0053】前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物としてはエステル交換させてなるものが好ましく、γ-リノレン酸を5～95質量%、好ましくは10～95質量%、更に好ましくは15～95質量%含有する油脂をエステル交換させてなるものが好ましく、特にγ-リノレン酸を上記含量含み、かつ、炭素数2～12の脂肪酸を5～40質量%、好ましくは10～30質量%、さらに好ましくは15～25質量%含有する油脂をエステル交換してなるものが好ましい。上記含量に調整する場合、脂肪酸単独、グリセリン脂肪酸エステルの脂肪酸残基として存在するもの双方を含む。原料としては、各種の動物性油脂、植物性油脂、ヤシグリ、モノグリ、MCT等の精製油脂、加工油脂やγ-リノレン酸、炭素数2～12の脂肪酸等の脂肪酸単独を用いることができ、特に制限されない。

【0054】特に、γ-リノレン酸を比較的多く含有す

る通常の食用油、例えば、月見草(=Evening Primrose、待宵草属植物)油、ボラージ(=Borago officinalis、紫草科植物)油、等の植物由来の油脂、更には、Mortierella属糸状菌、Cunninghamella属、Choanephora属等に由来する微生物発酵油脂、品質改良によって低不飽和化されたこれらの油脂およびこれらの水素添加油脂、分別油脂等が挙げられる。

【0055】また、(A)：ボラージ油、月見草、微生物発酵油脂の1種以上および／または(b)：炭素数2～12の脂肪酸、炭素数2～14の脂肪酸残基を1～3有するグリセリン脂肪酸エステル、およびこれらを含む油脂の1種以上を原料として調整した後、エステル交換することができる。

【0056】エステル交換の方法・条件としては、触媒を使用した化学的な方法、酵素を使用した生物的方法のいずれでも可能である。脂質分解酵素としては、アルカリゲネス属、キャンディダ属、リゾプス属、ムコール属またはシュドモナス属由来のリパーゼや、肝臓由来のホスホリパーゼA等が挙げられるが、特にキャンディダ属またはリゾプス属由来のリパーゼが好ましい。

【0057】例えば、ナトリウムメチラートを触媒とした場合、常圧・窒素気流下または10Pa以下の減圧下、80～120℃で、10～60分間エステル交換反応させる場合が好ましい。具体的には、ナトリウムメチラートを触媒とするエステル交換反応を行う場合、原料の混合物を100Pa以下の減圧下で80～120℃に加熱し、原料混合物に含まれる気体成分及び水分を除去する。これにナトリウムメチラート0.02～0.5質量%を添加し、常圧・窒素気流下あるいは10Pa以下の減圧下で10～60分間、80～120℃で攪拌することでエステル交換反応を行う。反応の完了はガスクロマトグラフィーにより反応生成物のトリグリセリド組成を測定することにより確認する。反応の停止は反応生成物に水を添加するかリン酸などの酸を添加して行う。その後、触媒および過剰の酸を除去するために十分な水洗を行い、乾燥後、反応油を常法にて脱色、脱臭する。

【0058】また、脂質分解酵素を用いた場合、40～100℃で2～48時間エステル交換反応させることが好ましい。この酵素は条件によって適宜その種類を選択することができる。例えば、γ-リノレン酸が単独で油脂中に存在している原料をエステル交換処理する場合に、1, 3位特異性の酵素を使用することができ、また、天然に存在する油脂に多く存在する2位にγ-リノレン酸残基を有するものを原料とする場合、ランダムにエステル交換する酵素が好ましい。具体的には、脂質分解酵素を用いてエステル交換反応を行う場合、脂質分解酵素の活性が十分に発揮される反応温度である40～100℃の範囲に調温する。これに脂質分解酵素を原料混合物に対して0.005～10質量%の割合で添加し、

2～48時間の範囲でエステル交換反応を行う。この反応は常圧下で窒素気流中で行うことが望ましい。反応の完了はガスクロマトグラフィーにより反応生成物のトリグリセリド組成を測定することにより確認する。反応の停止は酵素を濾過により除去することで行う。反応生成物は水洗、乾燥の後、常法にて脱色、脱臭する。なお、中鎖脂肪酸を使用した場合は、反応の停止後に遊離脂肪酸を薄膜式エバポレーターによって除去しておく。脂質分解酵素を用いたエステル交換反応が不十分であると、中鎖脂肪酸残基を分子内に3つ有するトリグリセリドの割合が多くなる。中鎖脂肪酸残基を分子内に3つ有するトリグリセリドの割合が多い油脂組成物は、体脂肪蓄積が少ないという特長はあるものの、調理加工適性が好ましくない。

【0059】炭素数2～12の脂肪酸に含まれる中鎖脂肪酸についてはすでに記述したが、中鎖脂肪酸に代えてまたはこれと共に中鎖脂肪酸トリグリセリドを用いることもできる。中鎖脂肪酸トリグリセリドとしては、前記中鎖脂肪酸とグリセリンとを常法によりエステル化反応に付して得られるトリグリセリドを用いることもできるが、一般にMCT (Medium Chain Triglycerides) と称される、ヤシ油分解脂肪酸等の炭素数が8～10の飽和脂肪酸から構成される単酸基または混酸基トリグリセリドである。例えばカプリル酸/カプリン酸=60～75/25～40 (質量比) のトリグリセリドが好適に使用できる。

【0060】トリグリセリドを構成する全脂肪酸に占めるγ-リノレン酸、中鎖脂肪酸の割合、およびγ-リノレン酸の1、3位トリグリセリド結合量の割合、油脂組成物を構成する全トリグリセリドに占める中鎖脂肪酸残基を分子内に3つ有するトリグリセリドの割合、および、必要な場合の油脂組成物を構成する全長鎖脂肪酸に占める長鎖飽和脂肪酸の割合は、原料油脂組成を勘案し、原料油脂と中鎖脂肪酸との使用比率を調整し、エステル交換反応中の反応生成物のトリグリセリド組成を測定することによって調整できる。

【0061】本発明の油脂組成物は、また、遺伝子組換の技術を用いて本発明の油脂組成物を生産するように品種改良した植物、例えば月見草、ボラージ、大豆、菜種、コーン、ヤシ、パーム、オリーブ、亜麻仁、ごま、米、ひまわり、紅花、つばき、綿実、クヘア等から抽出によって得ることも可能である。

【0062】上記のようにして得られる本発明の油脂組成物に、食用油脂を添加しても良い。食用油脂としては、月見草、ボラージ、大豆、菜種、コーン、ヤシ、パーム、オリーブ、亜麻仁、ごま、米、ひまわり、紅花、つばき、綿実、クヘア等の植物性油脂やそれらの水素添加した油脂、EPAやDHAを含有する魚油やラード、牛脂等の動物性油脂やそれらの水素添加した油脂等が挙げられる。

【0063】本発明品の食用油脂組成物は、そのままでもしくは調理用油脂組成物に通常用いられる添加剤を配合して、調理用また、上記のようにして得られる本発明の油脂組成物は、そのままでもしくは調理用油脂組成物に通常用いられる添加剤を配合して、調理用油脂組成物として使用することも出来る。かかる添加剤としては、保存安定性向上、酸化安定性向上、熱安定性向上、低温化での結晶抑制等を目的としたポリグリセリン脂肪酸エステル、ショ糖脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ビタミンE、アスコルビン酸脂肪酸エステル、リグナン、コエンザイムQ、リン脂質、オリザノール、ジグリセリド等、成人病予防作用、生活習慣病予防作用、生体内酸化抑制作用、肥満症予防作用を期待したビタミンE、アスコルビン酸脂肪酸エステル、リグナン、コエンザイムQ、リン脂質、オリザノール等が挙げられる。

【0064】ここで、前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物を加熱調理をしない用途、例えばゼラチンカプセルに充填した製剤やアイスクリーム等の原料として用いる場合には食用油脂組成物を構成する全トリグリセリドに占める、炭素数が2～12の脂肪酸残基を分子内に3つ含有するトリグリセリドの割合が10質量%以上であっても何ら問題はない。ただ、本発明の油脂組成物を加熱調理を目的として用いる場合には、10質量%以下であることが好ましく、3質量%以下であることがさらに好ましく、1質量%以下であることがさらに一層好ましい。この割合が10質量%を越えると、加熱調理時に発煙、泡立ちが増加し、油脂としての利用が制限される。該割合が1質量%以下であると、発煙、泡立ちに格段の改善が見られる。

【0065】本発明のPMS緩和作用があり、体脂肪蓄積が少ない油脂組成物は、γ-リノレン酸高含有油脂と炭素数2～12の脂肪酸を含有する油脂等とを適宜配合した後、ナトリウムメチラートを触媒としてまたは脂質分解酵素の存在下にエステル交換反応を行い、この際に、油脂組成物を構成する全脂肪酸に占める炭素数2～12の脂肪酸の割合が前記特定範囲内に入るように配合割合およびエステル交換反応を調整することにより得ることができる。上記エステル交換反応に際し、上記調整を加え、油脂組成物を構成する全トリグリセリドに占める、中鎖脂肪酸残基を分子内に3つ有するトリグリセリドの割合、および/または油脂組成物を構成する全長鎖脂肪酸に占める長鎖飽和脂肪酸の割合が前記特定範囲内に入るように調整することにより、PMS緩和作用があり、体脂肪蓄積が少なく、かつ、安定性の優れるより好ましい油脂組成物を得ることができる。

【0066】本発明の前記月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物は、前記月経前症候群症状緩和剤や、前記月経前症候群症状緩和用飲食物に好適に配合することもできる。このようにして得られる月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物は、一般に広く栄養補助食品で利用され

るソフトカプセルやハードカプセルに充填・加工して摂取することが可能であることはいうまでもない。この際、必要に応じてショ糖脂肪酸エステルやミツロウ等の乳化剤及び粘度調整剤を使用することもある。さらに、品質安定性、風味に優れていることから不飽和脂肪酸を多く含みながら、粉末状態の油脂、液状乳化状態の油脂に加工して直接摂取、あるいはこれらの粉末油脂、乳化油脂をさらに一般食品に利用加工して間接的に摂取することも可能である。一般食品への加工事例としては、クッキー、ビスケット、ケーキ、チョコレート、グミ等の菓子類、あるいは果汁飲料、栄養ドリンク、スポーツドリンク等の飲料類、あるいはドレッシング、マヨネーズ、マーガリン等の調味加工食品等、油脂を使用した加工食品へ一般的に利用が可能である。さらに、本発明のPMS緩用油脂組成物は、菜種油、コーン油、紅花油、大豆油といった一般に市販されている通常の食用油と同等あるいはそれ以上の風味を持ち、炒め物、揚げ物、マリネなどの調理に直接使用することも出来る。また、フライ調理時における油のハネ度合いは、通常の食用油と同等あるいはそれ以下である。

【0067】月経前症候群症状緩和効果の評価を適切に行い、これに対応することができる月経前症候群症状緩和剤、月経前症候群症状緩和用飲食物、月経前症候群症状緩和用食用油脂組成物等を提供することが重要である。

【0068】例えば、同時に発症しやすい症状ごとに2群以上に分類して、各群ごとにPMS症状緩和に対し有効であるハーブ類を組み合わせることも可能である。ここで、「2群以上に分類して」とは、特に、同一人に発症しやすい傾向にある症状により諸症状をグループ分けし、又は年代によって発症しやすい症状ごとに諸症状をグループ分けし、2群以上に分類して、ということの意味する。PMSの症状が人のタイプ（体質、環境、年代等の要因）によって2群以上に分類でき、好ましくは2～10群、より好ましくは2～6群、さらに好ましくは3～5群に分類できることを見いだしたものである。例えば、PMSの症状の中で、同時に発症しやすい症状を分類すると、以下のa～eの5群のような分類に分けられる。

a群：血流障害に関わる症状…肩こり、冷え症、陽性精神症状…怒りっぽい、攻撃的になる（気分が高揚する、気分を抑制できない、他人と口論する、家族や友人への暴言も含む）、イライラ、物事が面倒になる（女性であることが嫌になる、月経が嫌になる、人付き合いが悪くなるも含む）、涙もろい、不安が高まる、弱気になる、1人でいたい（家に引きこもる、誰も理解したり支えてくれないと思うも含む）乳房張

b群：陰性精神症状…憂うつ、整理整頓したくなる腰痛、下腹部張、食欲増、便秘、肌荒れ、眠くなる、

c群：疼痛…下腹痛、頭痛、下痢、にきびが出来易い、

疲れ易い、おりものが増える、無気力（自分をつまらない人間だと思ふ、自分の健康管理が出来ないも含む）

d群：むくみ、集中力低下（能率が低下する、いつものように仕事が出来ないも含む）

e群：乳房痛

なお、同じ群に分類されたものすべてが同時に発症することもあるが、そのうちの1又は2以上が同時に発症するという場合もある。また、その他の症状が加わることもある。また、各症状は代表的な表現で症状を表したものであり、ほぼ同義の症状を別の表現で表したもの、例えば、上記の「攻撃的になる」に対し、気分が高揚する、気分を抑制できない、他人と口論する、家族や友人への暴言等も同じ群に分類される。

【0069】以上のa～e群に関して、以下のような組み合わせで、又はa～dの各症状をさらに群分けすることで、2群以上、好ましくは2～10群、より好ましくは2～6群、さらに好ましくは3～5群に分類することができる。例えば、a、b、c、d、eで5群に分類、a+b、c、d、eやa+c、b、d、eやa+d、b、c、eやa+e、b、c、dやa、b+c、d、eやa、b+d、c、eやa、b+e、c、dやa、b、c+d、eやa、b、c+e、dやa、b、c、d+e等の4群に分類、a+b+c、d、eやa+b+d、c、eやa+b+e、c、dやa+c+d、b、eやa+c+e、b、dやa+d+e、b、cやa、b+c+d、eやa、b+c+e、dやa、b+d+e、cや、a、b、c+d+e等の3群、a+d+e、b+cやa+b+c+e等の2群に分類することが出来る。また、各群に属する症状を細かく分けて、例えば、a群に属する症状をa1群：肩こり、怒りっぽい、冷え性、イライラ、物事が面倒になる（女性であることが嫌になる、月経が嫌になる、人付き合いが悪くなるも含む）、a2群：乳房張、涙もろい、不安が高まる、a3群：攻撃的になる（気分が高揚する、気分を抑制できない、他人と口論する、家族や友人への暴言も含む）、弱気になる、1人でいたい（家に引きこもる、誰も理解したり支えてくれないと思うも含む）の3群に分け、b群をb1群：腰痛、食欲増、肌荒れ、眠くなる、b2群：下腹部張、便秘、憂うつ、整理整頓したくなるの2群に分け、c群をc1群：下腹痛、おりものが増える、にきびが出来易い、頭痛、c2群：下痢、疲れ易い、無気力（自分をつまらない人間だと思ふ、自分の健康管理が出来ないも含む）の2群に分けて、「a1+a2、a3、b1、b2、c1、c2」や「a1+a3、a2、b1、b2、c1、c2」や「a2+a3、a1、b1、b2、c1、c2」や「a1、a2、a3、b1+b2、c1、c2」や「a1、a2、a3、b1、b2、c1+c2」等の6群に分類することもできる。

【0070】また、「a、b+c+d+e」や「b、a+c+d+e」や「c、a+b+d+e」や「d、a+

$b+c+e$ 」や「 $e, a+b+c+d$ 」や「 $a+b, c+d+e$ 」や「 $a+c, b+d+e$ 」や「 $a+d, b+c+e$ 」や「 $a+e, b+c+d$ 」や「 $b+c, a+d+e$ 」や「 $b+d, a+c+e$ 」や「 $b+e, a+c+d$ 」や「 $c+d, a+b+e$ 」や「 $c+e, a+b+d$ 」や「 $d+e, a+b+c$ 」等の2群に分類することもできる。

【0071】これらの中でも特に好ましい分類としては、a、b、c、d、eで5群に分類する他、a、b、c、d+eの4群、a+b+e、c、dの3群等がある。

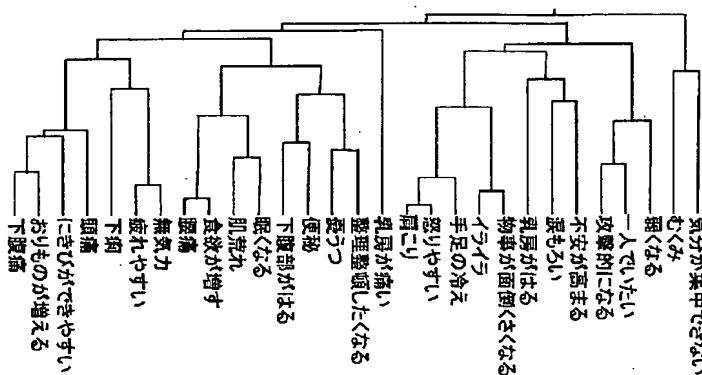
【0072】ここで、代表的な症状29種について樹形\*

\* 図に表すと表1のようになる。表1において、近い位置関係にある症状ほど同時に発症し易いことを表す。例えば、無気力と疲れやすい等は特に同時に発症しやすく、次に下痢、次に頭痛、にきびがでやすい等が同時に発症し易い症状といえ、同じグループに群分けされやすい。また、結ぶ線が短いほど同時に発症し易いことを表す。例えば、「おりものが増える」と「下腹痛」よりも「怒りやすい」と「肩こり」の方がより同時に発症し易い。

【0073】

【表 1】

### クラスター分析樹形図



【0074】上述したもの、また、それ以外も含め、例えば、PMS対応品として、製剤、食品や飲料等を考えた場合、その有効成分としては、以下のようなものがある。

【0075】「月見草油、ボラージ草油、セイヨウトチノキ種子、ショウガ、イチヨウ葉、セントジョーンズワート、バレリアン、緑茶、ツボクサ、エゾウコギ、ローズマリー、スカルキャップ、ホップ、バッションフラワー、ラズベリー、コンフリー、ニンク、サイリウム、センナ、オリーブ、クワ、カスカラサグラダ、カモミール、ブドウ種子、甘草、ルイボス、マツ、レモンバーム、エキナセア、ニンジン、杜仲、アロエ、ペパーミント、カバ、コンフリー、ジンジャー、フォーバーフュー、ブラックコホシュ、ザクロ、ローズマリー、キャットニップ、アニシード、チリペッパー、ハトムギ、シソの実、シソの葉、ペパーミント、ドクダミ、ヨモギ、トウガラシ、セイヨウタンポポ、バセリ、セロリ、アーティチョーク、エルダー、オウギ、オオアザミ、オオバコ、カバ、ギムネマ、キャットクロー、クランベリー、グレーブシード、ゴールデンシール、ゴボウ、サイヨウサンザシ、チャイニーズアンジェリカ、ネトル、バナバ、バンプキンシード、ビルベリー、マオウ、ヨヒンベ等のハーブや、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等のビタミン類、カルシウム、鉄、マグネシウム、亜鉛等の

ミネラル」これらを各群に適したものとするよう1種類又は2種類以上組み合わせることで各群対応品を製造できる。

【0076】例えば、前述のa、b、c、d+eの4群に対応させて、以下のような組合せ又は配合とすることができる。

【0077】a群：月見草油、ボラージ草油、セイヨウトチノキ種子、ショウガ、イチヨウ葉、セントジョーンズワート、パレリアン、緑茶、ツボクサ、エゾウコギ、ローズマリー、スカルキャップ、ホップ、パッションフラワー、ラズベリー、コンフリー、ニンニク、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等の成分を1種類又は2種類以上含む。

【0078】b群：月見草油、ボラージ草油、サイリウム、センナ、オリーブ、クワ、カスカラサグラダ、カモミール、ブドウ種子、甘草、ルイボス、ニンニク、マツ、レモンバーム、エキナセア、ニンジン、杜仲、アロエ、ペパーミント、カバ、コンフリー、ジンジャー、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等の成分を1種類又は2種類以上含む。

【0079】c群：月見草油、ボラージ草油、フィーバーフュー、ブラックコホシュ、ザクロ、ローズマリー、キャットニップ、アニシード、チリペッパー、ハトムギ、シソの実、シソの葉、ペパーミント、ドクダミ、ヨ

モギ、ラズベリー、コンフリー、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等の成分を1種類又は2種類以上含む。

【0080】d+e群：月見草油、ボラージ草油、ニンジン、トウガラシ、セイヨウタンポポ、バセリ、セロリ、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等の成分を1種類又は2種類以上含む。

【0081】さらに、PMSの発症し易い症状を年代別に2～8群に分類して、各群対応品を各分類に分けて販売することを特徴とし、好ましくは2～5群、さらに好ましくは2～3群に分類することを特徴とする。

【0082】ここで、「年代別に分類」とは、特徴的な症状が現れる年代によって分類することを意味する。

【0083】例えば、諸症状を年代別に2群に分類する場合、以下のような20歳代と30歳代に分けられる。

【0084】20歳代及び30歳代ともに基本的症状として、下腹痛、イライラ、おりものが増える、眠気のうちの0又は1以上の症状を含み、さらに年代により以下の特徴的な症状を含む。

【0085】特徴的な症状：20歳代－乳房張、ニキビ、腰痛、食欲増のうちの1又は2以上の症状、30歳代－頭痛、肩こりのうちの1又は2の症状また、諸症状について同義表現が含まれるのは前述同様である。

【0086】ここで、20歳代とは20～29歳を意味することはもちろんのこと、個人差により、20～29歳±5歳をも含められる。同様に30歳代も30～39歳はもちろんのこと、30～39歳±5歳をも含められる。

【0087】ここで、食品や飲料等を考えた場合、各群に適した成分は、例えば、以下のようなものがある。

【0088】20歳代－月見草油、ボラージ草油、パッションフラワー、ラズベリー、セイヨウタンポポ、オリーブ、クワ、カスカラサグラダ、カモミール、ブドウ種子、甘草、ニンニク、レモンバーム、エキナセア、ニンジン、杜仲、アロエ、ペパーミント、カバ、コンフリー、ジンジャー、シソの実、シソの葉、ヨモギ、ハトムギ、ドクダミ、ローズマリー、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等の成分を1種類又は2種類以上含む。

【0089】30歳代－月見草油、ボラージ草油、セイヨウトチノキ種子、ショウガ、イチョウ葉、セントジョーンズワート、バレリアン、緑茶、エゾウコギ、ローズマリー、スカルキャップ、ホップ、パッションフラワー、ラズベリー、ニンニク、カモミール、レモンバーム、フィバーフュー、ブラックコホシュ、ザクロ、ローズマリー、キャットニップ、アニシード、チリペッパー、セロリ、シソの実、シソの葉、ペパーミント、ドクダミ、ヨモギ、ビタミンA、ビタミンB1、B2、B6、B12、ビタミンC、ビタミンD、ビタミンE等の

成分を1種類又は2種類以上含む。さらに、本発明の油脂組成物はPMSのみならず、月経中の症状にも効果も期待できるものである。

【0090】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明はそれらによって限定されるものではない。

実施例1

ボラージ草油（日本合成化学工業株式会社製）に、リパーゼQL（名糖産業株式会社製）0.1部を添加し、攪拌下60℃にて15時間、エステル交換反応を行った。反応後酵素を濾別し、濾液中の遊離脂肪酸を薄膜式エバポレーターにて除去後、脱色、脱臭して油脂組成物1を得た。油脂組成物3のトリグリセリド組成および脂肪酸組成を表1に示す。

【0091】実施例2

月見草油（EPO-30、タマ生化学株式会社製）80質量部と構成脂肪酸が質量比でカプリル酸／カプリン酸＝3／1であるMCT20質量部とを混合後、減圧下120℃で攪拌し、脱気および脱水処理を行った。これに触媒としてナトリウムメチラート0.1質量部を加え、120℃で30分間、ランダムエステル交換反応を行った。反応生成物を常法に従って水洗、乾燥後、脱色、脱臭して油脂組成物2を得た。油脂組成物2のトリグリセリド組成および脂肪酸組成を表1に示す

【0092】実施例3

月見草油（EPO-30；タマ生化学工業株式会社製）77質量部と質量比でカプリル酸／カプリン酸＝1／1の中鎖脂肪酸混合物23質量部とを混合後、混合物にリパーゼQL（名糖産業株式会社製）0.1部を添加し、攪拌下60℃にて15時間、エステル交換反応を行った。反応後酵素を濾別し、濾液中の遊離脂肪酸を薄膜式エバポレーターにて除去後、脱色、脱臭して油脂組成物3を得た。油脂組成物3のトリグリセリド組成および脂肪酸組成を表1に示す。

【0093】実施例4

ボラージ草油（日本合成化学工業株式会社製）80質量部と構成脂肪酸が質量比でカプリル酸／カプリン酸＝3／1であるMCT20質量部との混合物にリボザイム（NOVO株式会社製）0.1質量部を添加し、攪拌下60℃で15時間、エステル交換反応を行った。反応生成物から酵素を濾別し、濾液を水洗、乾燥後、脱色、脱臭して油脂組成物4を得た。油脂組成物4のトリグリセリド組成および脂肪酸組成を表1に示す。

【0094】比較例1

綿実油（日清製油株式会社製）80質量％、大豆油（日清製油株式会社製）15質量％、オリーブ油（日清製油株式会社製）5質量％を混合し、油脂組成物5を得た。油脂組成物7のトリグリセリド組成および脂肪酸組成を表2に示す。



【0095】比較例2

\* 2に示す。

油脂組成物6として、ボラージ油（日本合成化学工業株式会社製）のトリグリセリド組成および脂肪酸組成を表\*

【0096】

【表2】

表1 油脂組成物の分析値

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
	油脂組成物1	油脂組成物2	油脂組成物3	油脂組成物4
γ-リノレン酸 (1, 3位)	50.2	50.3	50.4	41.8
γ-リノレン酸 (2位) [モル%]	49.8	49.7	49.6	58.2

C 8:0	0.0	15.0	17.3	15.5
C10:0	0.0	5.0	5.8	4.5
C16:0	10.3	8.2	5.0	7.6
C16:1	0.1	0.1	0.0	0.1
C18:0	4.4	3.5	2.4	3.7
C18:1	17.4	13.9	7.9	12.8
C18:2	36.6	29.3	37.2	30.4
C18:3α	0.2	0.2	0.0	0.2
C18:3γ	21.8	17.4	23.9	16.9
C20:0	0.3	0.2	0.5	0.2
C20:1	4.2	3.4	0.4	3.8
C22:0	0.2	0.2	0.2	0.2
C22:1	2.7	2.2	0.0	2.6
C24:0	0.1	0.1	0.1	0.1
C24:1	1.7	1.3	0.3	1.4
合計 [質量%]	100.0	100.0	100.0	100.0

【0097】

【表3】

表2 油脂組成物の分析値

	比較例1	比較例2
	油脂組成物5	油脂組成物6
γ-リノレン酸 (1, 3位)	0	22.0
γ-リノレン酸 (2位)	0	78.0

30

40

[モル%]		
C 8:0	0.0	0.0
C10:0	0.0	0.0
C16:0	19.5	10.3
C16:1	0.6	0.1
C18:0	3.3	4.4
C18:1	23.9	17.4
C18:2	48.9	36.6
C18:3α	1.4	0.2
C18:3γ	0	21.8
C20:0	0.4	0.3
C20:1	0.1	4.2
C22:0	0.3	0.2
C22:1	0.0	2.7
C24:0	0.1	0.1
C24:1	1.5	1.7
合計 [質量%]	100.0	100.0

【0098】実施例5

4週齢のウィスター系雄ラットに、油脂組成物1～6をそれぞれ25質量%添加した飼料を8週間自由摂取させた。飼料の組成を表3に示す。必須脂肪酸不足を防ぐた

めに、すべての飼料に対して大豆油を3質量%添加し

た。ビタミンおよびミネラルは、アメリカ栄養学会が推奨したものを用い、飼料への添加量はエネルギー密度により調整した。実験食投与8週間後に各群8匹ずつ解剖し、内臓脂肪質量を測定した。また、皮下脂肪量を測定するため、屍体を凍結乾燥し脂肪含量をソックスレーを用いて測定した。8週間飼育したラットの結果を表5に示す。飼料摂取量、終体重、尾長は、各試験区で統計的に有意な差はみられなかった。8週間飼育したラットの内臓脂肪組織質量および皮下脂肪量は、油脂組成物2～4群で統計的に有意に低値を示した。動物試験の結果から、油脂組成物を構成する全脂肪酸に占める中鎖脂肪酸の割合が本発明の範囲内に入る油脂組成物2～4を使用した場合では、比較例油脂組成物5、6を使用した場合に比し、体脂肪蓄積が少ないことが判明した。

【0099】

【表4】

\*

表4 動物試験の結果（8週間飼育）

	油脂組成物 1	油脂組成物 2	油脂組成物 3	油脂組成物 4
飼料摂取量 (g/8週)	693± 5	691± 6	698± 7	695± 7

終体重 (g)	293± 5	290± 5	288± 5	290± 5
尾長 (cm)	18±1	19±1	18±1	18±1
内臓脂肪 (g)	22±2	17±1 *	18±1 *	17±1 *
皮下脂肪 (g)	30±2	25±2 *	25±2 *	25±1 *
	油脂組成物 5	油脂組成物 6 (対照)		
飼料摂取量 (g/8週)	696± 4	693± 5		
終体重 (g)	291 ±5	293± 5		
尾長 (cm)	18±1	18±1		
内臓脂肪 (g)	22±1	22±2		
皮下脂肪 (g)	30±1	30±2		

注) データは、平均値±標準誤差で表した。

\*印: 対照と比べて危険率5%以下で有意な差あり。

注) データは、平均値±標準誤差で表した。

\*印: 対照と比べて危険率5%以下で有意な差あり。

## 【0101】実施例6

油脂組成物を用いて品質安定性、官能評価試験を行った。品質安定性試験は基準油脂分析試験法(JOCS 2, 4, 28, 2-93 CDM試験)に準拠して、強制的に自動酸化を促進した酸化安定性試験で評価を行った。また、風味の評価を官能的に行った。各パネラーが対照区と比較してどの様に評価するか(良好、どちらで

表3 飼料組成

	組成%
油脂組成物	25.0

コーンスターチ	25.1
カゼイン	25.4
シュクロース	10.0
大豆油	3.0
セルロース	5.0
ミネラル混合	4.5
ビタミン混合	1.3
Ｌ-シスチン	0.38
重酒石酸コリン	0.32

【0100】

【表5】

もない、悪い)という3区分で評価して行った。その結果を表5に記す。その結果、表の数字は強制的な酸化促進試験であるCDM試験におけるグラフの偏曲点の時間を示しているが、油脂組成物6(対照)と比較して油脂組成物1～4は2倍近い値を示し、酸化安定性に優れていることが分かる。これに対し、油脂組成物5では酸化安定性が悪く、対照区と差のないことがわかる。

【0102】

\* \* 【表6】

表5 品質安定性、官能評価試験の結果

	品質安定性： CDM試験	風味評価： 官能評価試験
--	-----------------	-----------------

	折曲点	良好	どちらとも	悪い
油脂組成物1	○：8.7	8	7	0
油脂組成物2	○：7.8	10*	5	0
油脂組成物3	○：8.0	10*	4	1
油脂組成物4	○：8.2	10*	4	1
油脂組成物5	×：4.0	6	9	0
油脂組成物6（対照）	4.1			

注）風味評価の中の数字は評価した人数を示す。（全体評価者数＝15名）

油脂組成物1～4は独立性検定の結果、統計的に有意に「良好」と評価した人が多いことを示す。

（品質安定性評価）

○：油脂組成物1～4は対照の油脂より折曲点の時間が長く、安定であることを判断される。

×：対照油脂と何ら変わらない。

## 【0103】実施例7

4週齢のウィスター系雄性ラットに対し、油脂組成物の吸収速度の確認実験を行った。対照区としては油脂組成物6を使用し、試験区として油脂組成物1、3を使用した。試験方法は、ラットにカテーテルで強制的に口腔から試料を摂取させ、小腸門脈、およびリンパ管液を経時的に採取し、脂肪酸の分析を行った。その結果を表6に記す。この結果から、油脂組成物1、3は門脈を通して※

※肝臓に運ばれ、速やかに遊離脂肪酸の形で吸収され、生理機能を発揮していることが示唆された。また、油脂組成物1と3では、有意差はないものの傾向として油脂組成物3のほうが即効性に優れている可能性が示唆された。

【0104】

【表7】

表6. 門脈、およびリンパ液におけるγ-リノレン酸濃度の経時変化

	開始時	0.5 時間後	1.5 時間後
油脂組成物1	門 100	門 195*	門 120
	リン 100	リン 112*	リン 101
油脂組成物3	門 100	門 228*	門 125

油脂組成物6（対照）	門 100	門 112	門 102
	リン 100	リン 172	リン 131

注）表中の数字は、門脈血中あるいはリンパ血中の実験開始時におけるγ-リノレン酸濃度を100として、相対値で示したものである。

欄中の上段値：門脈血中の開始時の値に対する相対値。下段：リンパ血中の開始時の値に対する相対値を示す。

\*印：対照と比べて危険率5%以下で有意な差あり。

## 【0105】実施例8

PMS症状を訴える98人に対して、症状軽減度、およびその即効性の確認試験を行った。対照区としては、油脂組成物5及び油脂組成物6を使用した。試験区として★

40★油脂組成物1、3を使用した。被験者をほぼ各25名づつの4群に分け（対照区、試験区）て、ブラインド試験で行った。試験期間は6ヶ月実施した。

- ・摂取するもの：油脂250mg＋ビタミンE8mg／1カプセル
- ・摂取量及び期間：4カプセル／1日を黄体期にあたる期間（個人差あり）毎日摂取することを6ヶ月周期継続して摂取
- ・記録方法：摂取する期間だけでなく、毎日（2～3ヶ月周期期間中）症状及びその重度（0～3の4段階スコア）を記入  
（スコア：0＝症状なし 1＝やや気になる程度 2＝気になる 3＝生活に支障をきたす）

## ・評価方法

：各自が記入した記録を回収し、集計した。

集計は、症状の重度（0～3の4段階スコア利用）に関して、各人1黄体期あたりの平均値を群毎にさらに平均した数値で示している。

その結果（表7）、試験区では摂取3ヶ月の時点で既に身体症状、精神社会症状共に症状の重さを示す1黄体期当たりのスコア合計値は統計的に有意に低く、従って症状の緩和効果が確認された。このことより、同量のγ-リノレン酸を摂取してもその効果に差があり、油脂組\*

\*成物1、3の方が優れていることがわかった。なお、油脂組成物1と3の間には有意差は認められないものの、傾向としては、油脂組成物3のほうが効果が高かった。  
【0106】  
【表8】

表7 PMS症状緩和に対する油脂組成物の効果

試験群	症状区分	予備調査	3ヶ月後	6ヶ月後
試験区 (油脂組成物1)	身体症状	0.72	0.30*	0.20*
	精神社会症状	0.75	0.30*	0.20*
試験区 (油脂組成物3)	身体症状	0.70	0.26*	0.18*
	精神社会症状	0.74	0.27*	0.15*
対照区 (油脂組成物5)	身体症状	0.35	0.32	0.38
	精神社会症状	0.63	0.65	0.68
対照区 (油脂組成物6)	身体症状	0.63	0.50	0.40
	精神社会症状	0.60	0.70	0.70

注) 表中の数字は、1黄体期あたりの合計PMSスコアの平均値。

身体症状とは、下腹痛、腰痛、頭痛、下腹部張、肩凝り、食欲増、下痢、便秘、乳房張、眠気、おりもの増、に対する個別評価の平均値

精神症状とは、イライラ、憂うつ、怒りばい、に対する個別評価の平均値

社会症状とは、物事が面倒、他人に暴言、整理整頓がしたい等の個別評価の平均値。

\*印：対照（油脂組成物6）と比べて危険率5%以下で有意な差あり。

## 【0109】実施例9

PMS症状の比較的重い62人に対して、症状軽減、即効性の確認試験を行った。対照区としては油脂組成物6を使用した。試験区として、油脂組成物1、3を使用した。被験者をほぼ各20名ずつの3群に分け（対照区、試験区）、250mgの油脂を含むカプセルを1日8個摂取した。摂取は原則として、被験者の自己判断にて黄体期において摂取することとした。また、試験はブラインド試験方法である。試験期間は3ヶ月実施した。実施例8の追加・確認実験として摂取量を増やして本実験を※

※実施した。試験期間、摂取カプセル数以外の試験方法及び評価方法は、実施例8と同様に行った。その結果を表8に記す。油脂組成物1と3では、有意差はないものの、傾向として油脂組成物3のほうが即効性に優れている可能性が示唆された。これらの結果から、この即効性はγ-リノレン酸の量ではなく、γ-リノレン酸の1、3位結合量と2位結合量の違いによるもの、さらには中鎖脂肪酸の必要性も重要であることが推察された。

【0110】

【表9】

表8 PMS症状緩和に対する油脂組成物の効果

試験群	症状区分	試験開始	3ヶ月後
試験区 (油脂組成物1)	身体症状	0.83	0.30*
	精神社会症状	0.72	0.30*
試験区 (油脂組成物3)	身体症状	0.85	0.26*
	精神社会症状	0.75	0.25*
対照区 (油脂組成物6)	身体症状	0.80	0.70
	精神社会症状	0.80	0.80

注) 表中の数字は、1黄体期あたりの合計PMSスコアの個人平均値。

身体症状、精神社会症状は、表7と同様である。

\*印：対照と比べて危険率5%以下で有意な差あり。

【00111】

50 【発明の効果】本発明のグリセリン脂肪酸エステルを配

合することで得られる月経前症候群症状緩和剤、月経前症候群症状緩和用飲食物、月経前症候群緩和用油脂組成物は、月経前症候群症状緩和効果を有し、かつ、即効性に優れている。症状が発現してから摂取することでも好適な効果を得ることができる。また、炭素数2～12の\*

\* 脂肪酸を有する場合は吸収性に優れると同時に、体脂肪蓄積性が低く、また、風味、品質安定性で優れる。また、各症状に適切に対応することができるため、その即効性とあいまって、ニーズに答え得るものが得られる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターマコード (参考)	
A 6 1 K	31/51	A 6 1 K	31/525	4 C 2 0 6
	31/525		31/714	4 H 0 5 9
	31/714		35/78	B
	35/78			C
				Q
		A 6 1 P	15/00	
A 6 1 P	15/00	C 1 1 C	3/00	
C 1 1 C	3/00		3/10	
	3/10	C 1 2 P	7/64	
// C 1 2 P	7/64	A 2 3 D	9/00	5 1 6

(72)発明者 根岸 聡  
東京都世田谷区上用賀 6-20-4-608

F ターム (参考) 4B018 LB01 LB08 LE05 MD15 MD61  
MD66 ME14 MF12  
4B026 DC05 DG01 DG05 DG10 DH01  
DL06  
4B064 AD89 CA21 CB26 CC03 CD22  
DA01 DA10  
4C086 AA01 AA02 BA09 BC18 BC83  
CB09 DA39 MA02 MA04 MA52  
ZA81  
4C088 AB02 AB26 AB40 AB81 MA02  
MA52 ZA81  
4C206 AA01 AA02 DB09 DB47 DB48  
MA01 MA02 MA04 MA72 ZA81  
4H059 BA33 BB02 BB03 BB05 BB06  
BC13 BC48 CA35 CA72 EA17